

日本国特許庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

JC960 U.S. PRO
09/761191
01/18/01

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office.

出願年月日
Date of Application:

2000年 1月26日

出願番号
Application Number:

特願2000-021870

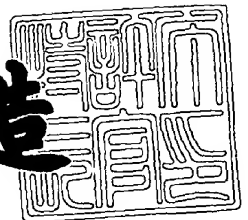
出願人
Applicant(s):

ソニーケミカル株式会社

2000年 9月 1日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2000-3070926

【書類名】 特許願

【整理番号】 SCP990127

【提出日】 平成12年 1月26日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C09J163/00

【発明者】

 【住所又は居所】 栃木県鹿沼市さつき町 1 2 - 3 ソニーケミカル株式会
 社内

 【氏名】 熊倉 博之

【特許出願人】

 【識別番号】 000108410

 【氏名又は名称】 ソニーケミカル株式会社

 【代表者】 栗田 英之

【代理人】

 【識別番号】 100095588

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 田治米 登

【代理人】

 【識別番号】 100094422

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 田治米 恵子

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 009977

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

 【物件名】 要約書 1

 【包括委任状番号】 9706809

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 接着剤組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 絶縁性樹脂、光重合開始剤及びオキセタン化合物を含有することを特徴とする接着剤組成物。

【請求項 2】 オキセタン化合物が接着剤組成物 1 0 0 重量%中に 5 ～ 5 0 重量%含まれている請求項 1 記載の接着剤組成物。

【請求項 3】 さらに導電性粒子が含まれている請求項 1 又は 2 記載の異方導電性接着剤組成物。

【請求項 4】 プラスチック基板と回路基板の相對峙する電極間を請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の接着剤組成物で接続した接続構造体。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、プラスチック液晶ディスプレイ（P L C D）等を使用されるプラスチック基板の接続に適した接着剤組成物に関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

液晶ディスプレイ（L C D）周辺の接続材料として、熱硬化型エポキシ系異方導電性接着フィルムが認知され、実用化されている。

【 0 0 0 3 】

また、近年では、液晶ディスプレイを軽量化するために、従来の液晶ディスプレイのガラス基板をプラスチック基板に代えたプラスチック液晶ディスプレイが開発されており、このプラスチック基板の接続材料としても、熱硬化型エポキシ系異方導電性接着フィルムが使用されている。

【 0 0 0 4 】

【発明が解決しようとする課題】

ところで、プラスチック液晶ディスプレイに用いられるプラスチック基板はガラス基板に比べて耐熱性が劣る。一方、従来の熱硬化型エポキシ系異方導電性接

着フィルムの接続温度は200℃程度である。このため、従来の熱硬化型エポキシ系異方導電性接着フィルムをプラスチック基板の接続に用いると、基板が変形し、良品が得られないという問題がある。

【0005】

これに対しては、最近、接続温度を100～140℃にできるラジカル重合系の低温硬化型異方導電性接着フィルムが検討されている。しかし、この低温硬化型異方導電性接着フィルムによると基板の変形は抑制できるが十分な接続信頼性が得られない。これは、ラジカル重合系の低温硬化型異方導電性接着フィルムは、熱硬化型エポキシ系異方導電性接着フィルムに比して硬化収縮率が大きいため、内部に応力が残り易く、エージング後、特に高温下でのエージング後に剥離が発生し易くなるためと考えられる。

【0006】

また、従来の熱硬化型エポキシ系異方導電性接着フィルムに比して接続温度が低い接続材料としては、紫外線を用いるラジカル重合系の光硬化型異方導電性接着フィルムも知られているが、上述の低温硬化型異方導電性接着フィルムと同様に、基板の熱変形は抑制できるが十分な接続信頼性を得ることができない。

【0007】

本発明は以上のような従来技術の問題点を解決しようとするものであり、プラスチック液晶ディスプレイに用いられるプラスチック基板に対しても十分な接続信頼性を得ることのできる異方導電性接着フィルム等の接続材料を得ることを目的としている。

【0008】

【課題を解決するための手段】

本発明者は、光カチオン重合系の接着剤組成物において、オキセタン化合物を配合すると接着剤組成物の反応性が高まり、硬化時間を大幅に短縮できると共に接続信頼性が高まり、耐熱性の低いプラスチック基板も良好に接続できることを見出し、本発明を完成させるに至った。

【0009】

即ち、本発明は、絶縁性樹脂、光重合開始剤及びオキセタン化合物を含有する

ことを特徴とする接着剤組成物を提供する。

【 0 0 1 0 】

【発明の実施の形態】

以下、本発明を詳細に説明する。

【 0 0 1 1 】

本発明の接着剤組成物は、絶縁性樹脂、光重合開始剤及びオキセタン化合物を含有する。

【 0 0 1 2 】

ここで、絶縁性樹脂としては、エポキシ系樹脂、ビニルエーテル系樹脂、ラクトン系樹脂等を使用することができ、特に比較的安価で耐熱性や密着性にも優れる点から、エポキシ系樹脂を使用することが好ましい。

【 0 0 1 3 】

エポキシ系樹脂としては、例えば、ビスフェノール A 型、ビスフェノール F 型、ノボラック型、脂環式等の液状又は固形のエポキシ樹脂を好ましく使用することができる。特に、脂環式エポキシ樹脂を使用することにより、紫外線照射で硬化させるときの硬化速度を上げることが可能となる。

【 0 0 1 4 】

光重合開始剤としては、芳香族スルホニウム塩を有するものなどの一般的な光重合開始剤を使用することができる。例えば、4, 4'-ビス [ジ (β-ヒドロキシエトキシ) フェニルスルフォニオ] フェニルスルフィドビスヘキサフルオロアンチモネート等 (旭電化工業 (株) 製、アデカオプトマー SP-170、SP-150 等) を好ましく使用することができる。

【 0 0 1 5 】

光重合開始剤の配合量は、接着剤組成物 100 重量%中に 0.5~5 重量%とすることが好ましい。光重合開始剤を過剰に使用すると接着性が低下する場合があります、一方、光重合開始剤の使用量が少なすぎると硬化し難くなる。

【 0 0 1 6 】

本発明において、オキセタン化合物とは、次式のオキセタン環

【 0 0 1 7 】

【化 1】



【 0 0 1 8 】

を有する種々の化合物をいう。このオキセタン化合物は、接着剤組成物の反応性を高めるために、本発明において特徴的に配合されるものである。オキセタン化合物の配合により接着剤組成物の反応性が高まる理由は、次のように考えられる。即ち、本発明で使用するオキセタン環を有する環状エーテル化合物や、従来よりカチオン重合での反応促進剤として使用されているオキシラン環

【 0 0 1 9 】

【化 2】



【 0 0 2 0 】

を有する環状エーテル化合物のカチオン開環重合は、オキソニウムイオンに対する中性分子の攻撃と考えられ、一般に S_N2 反応で進行するとされている。ここで、重合速度に大きく寄与する因子としては、環状エーテル化合物の環歪みエネルギー、求核性（塩基性）、立体障害等が考えられる。このうち、環歪みエネルギーは開環のし易さを支配する因子であり、塩基性は活性末端への攻撃の強さを表す指標である。無置換のオキセタン環の環歪みエネルギーは、 27.3 kcal/mol であり、無置換のオキシラン環の環歪みエネルギーは 25.5 kcal/mol であるから、両者に大きな差は見られない。しかし、塩基性を示す pK_b はオキセタン環が 7.4 、オキシラン環が 3.1 であり、オキセタン環の方が大きい。ここで、 K_b は塩基の解離定数であり、 pK_b が小さい程塩基性が強

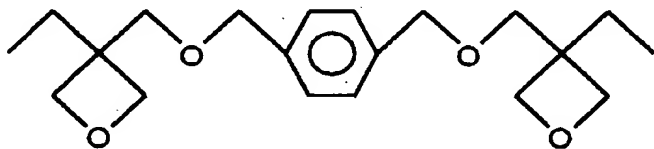
い。このため、オキシラン環の場合は環上の酸素の塩基性が生成ポリマー主鎖中のエーテル酸素よりも弱いため、重合活性末端からポリマー主鎖中のエーテル酸素への連鎖移動が生じやすく、重合速度の低下や環状オリゴマーの副生による重合度の低下が生じるが、オキセタン環の場合は環上の酸素の塩基性が強いため、ポリマー主鎖への連鎖移動は低減されと考えられる。したがって、オキセタン環は、開環重合に対する反応性がオキシラン環よりも高くなる。

【 0 0 2 1 】

オキセタン化合物の具体例としては、例えば、

【 0 0 2 2 】

【化 3】

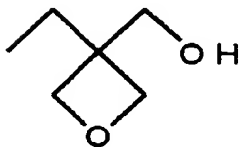


【 0 0 2 3 】

キシリレンジオキセタン (XDO)、

【 0 0 2 4 】

【化 4】

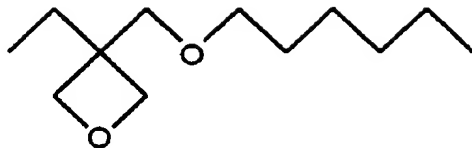


【 0 0 2 5 】

3-エチル-3-(ヒドロキシメチル) オキセタン (EOXA)、

【0026】

【化5】

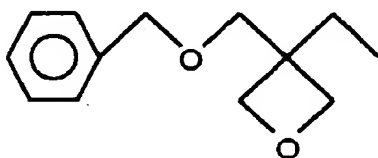


【0027】

3-エチル-3-(ヘキシロキシメチル)オキセタン (HOX)、

【0028】

【化6】

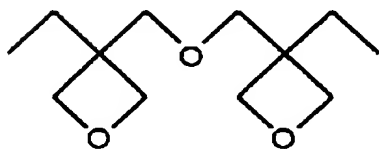


【0029】

3-エチル-3-(フェノキシメチル)オキセタン (PHO)、

【0030】

【化7】



【0031】

ビス { [1-エチル (3-オキセタニル)] メチル } エーテル (DOX)
等を使用することができる。特に、反応性が高い点から2官能のXDOとDOX
が好ましい。

【0032】

オキセタン化合物の配合量は、接着剤組成物に使用する絶縁性樹脂の種類等に

もよるが、通常、接着剤組成物 1 0 0 重量%中に 5 ~ 5 0 重量%とすることが好ましい。配合量が多すぎると接着剤組成物の反応性が過度に高くなって硬化物が硬くなり、接着剤組成物を異方導電性接着剤として用いる場合に接続抵抗が高くなる。反対に配合量が少なすぎると接着剤組成物の反応性を十分に高めることができない。

【 0 0 3 3 】

本発明の接着剤組成物には、この他、必要に応じて、種々の添加剤、例えば、イソシアネート系架橋剤、エポキシシラン化合物等のカップリング剤、エポキシ変性シリコン樹脂、あるいはフェノキシ樹脂等の熱硬化性の絶縁性樹脂を添加することができる。

【 0 0 3 4 】

さらに、本発明の接着剤組成物に導電性粒子を配合することにより、異方導電性接着剤組成物を得ることができる。

【 0 0 3 5 】

導電性粒子としては、例えば、N i、A g、C u又はこれらの合金等からなる金属粉、球状樹脂粒子の表面に金属メッキを施したもの、これら電氣的良導体からなる粒子の表面に絶縁性樹脂被膜を設けたものなど、従来より異方導電性接着剤に用いられている種々の導電性粒子を使用することができる。導電性粒子の粒径は、0. 2 ~ 2 0 μ mとすることが好ましい。

【 0 0 3 6 】

本発明の接着剤組成物は、必要に応じて溶剤を使用し、以上の各成分を常法にしたがって混合することにより製造でき、その形態は、ペースト状、フィルム状等任意の形態とすることができる。

【 0 0 3 7 】

得られた接着剤組成物は、紫外線等の照射により速やかに硬化する。例えば、本発明の接着剤組成物をフィルム状のシート（厚さ 2 5 μ m程度）に成形し、それをポリエーテルスルホン（P E S）樹脂からなるプラスチック基板と 2 層フレキシブル基板（F P C）の間に挟み、紫外線照射（照射条件：メタルハライドランプ 3 0 0 0 m J / c m²）した場合、1 0 秒以内に硬化し、これらを接続する

ことができる。したがって、本発明の接着剤組成物は、種々の被接着物の接続材料として有用なものとなる。特に、接続温度を 100°C 以下にできるため、プラスチック液晶ディスプレイ等に用いられるプラスチック基板と任意の回路基板の相対峙する電極間を良好に接続することができる。本発明は、かかる接続構造体も包含する。

【0038】

【実施例】

以下、本発明を実施例に基づいて具体的に説明する。

【0039】

実施例1

以下の表1の成分をトルエン及びMEK 1 : 1の混合溶剤を用いて均一に混合し、PETフィルム上にコーティング後、溶剤を揮発させ、 $25\mu\text{m}$ 厚の異方導電性接着フィルムを作製した。

【0040】

この異方導電性接着フィルムをフレキシブルプリント配線板の回路部に仮貼りし、プラスチック基板と対向させ、仮固定した。接続部に圧力(0.98MPa)をかけながらプラスチック基板側から紫外線を照射し(メタルハライドランプ、光量 $3000\text{mJ}/\text{cm}^2$)、接続温度 60°C で硬化させ、フレキシブルプリント配線板とプラスチック基板との接続構造体を得た。

【0041】

得られた接続構造体の(1)接続抵抗安定性、(2)接着強度、(3)反応率、(4)外観について、それぞれ次のように評価した。結果を表1に示す。

【0042】

(1)接続抵抗安定性

接続構造体を 60°C 、 $95\% \text{RH}$ で500時間エージングし、そのエージングの前後で抵抗を測定し、抵抗上昇の大きさによって次の基準で評価した。

【0043】

抵抗上昇が 10Ω 未満の場合：○

抵抗上昇が 10Ω 以上 50Ω 未満の場合：△

抵抗上昇が $50\ \Omega$ 以上の場合：×

【0044】

(2) 接着強度

接続構造体を 60°C 、 $95\%\text{RH}$ で 500 時間エージングし、そのエージングの前後で 90° 方向のピール強度を測定した。

【0045】

(3) 反応率

FT-IR により測定した。

【0046】

(4) 外観

目視観察により接続部を観察し、ウキの有無によって次の基準で評価した。

【0047】

ウキがない場合：○

ウキが 30% 未満である場合：△

ウキが 30% 以上である場合：×

【0048】

実施例 2 ～ 10

接着剤組成物の成分を表 1 のようにする以外は実施例 1 と同様にして異方導電性接着剤を作製し、得られた異方導電性接着剤を用いて、実施例 1 と同様のプラスチック基板に IC チップ (0.4 mm 厚、 $6 \times 6\text{ mm}$ □、 $100 \times 100\ \mu\text{m}$ □ バンプ (Au メッキ)、バンプピッチ $150\ \mu\text{m}$) を、実施例 1 と同様の接続条件で実装し、評価した。結果を表 1 に示す。

【0049】

比較例

実施例 1 の接着剤組成物の成分において、オキセタン化合物 (XDO) 20 重量部に代えて環式脂肪族エポキシ樹脂 (エポカバ 株式会社製、ERL4299) 20 重量部を使用する以外は、実施例 1 と同様にして異方導電性接着フィルムを作製し、その異方導電性接着フィルムを用いて接続構造体を得、得られた接続構造体を評価した。結果を表 1 に示す。

【0050】

【表1】

成分	実施例1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	(重量部) 比較例
絶縁性樹脂											
7E/キシ樹脂 (ユニオン・イト社製、PKHH)	40										40
環式脂肪族エポキシ樹脂 (ユニオン・イト社製、ERL4221)	30	20	←	←	←	←	←	←	←	←	30
環式脂肪族エポキシ樹脂 (ユニオン・イト社製、ERL4299)											20
ビス7E/7A型エポキシ樹脂 (油化シェルエポキシ社製、EP828)	10	10	←	←	←	←	←	←	←	←	10
ビス7E/7A型エポキシ樹脂 (油化シェルエポキシ社製、EP1001)											
ナフレン骨格エポキシ樹脂 (大日本インキ化学工業社製、HP4032D)	40	40	←	←	←	20	50	65	10	67	
オキセタン化合物											
XD0 (東亜合成社製)	20	20	20	20	20	30	10	5	30	3	
EOXA (東亜合成社製)		10									
HOX (東亜合成社製)			10	10		20	10		30		
PH0 (東亜合成社製)											
DOX (東亜合成社製)					10						
シランカップリング剤 (日本ユニオン社製、A-187)	1	1	←	←	←	←	←	←	←	←	
カチオン系光重合開始剤 (旭電化社製、SP-150)	3	3	←	←	←	←	←	←	←	←	
カチオン系光重合開始剤 (旭電化社製、SP-170)											
導電性粒子											
Ni-Auメッキ樹脂粒子 (φ5μm) (日本化学工業社製)	5	10	←	←	←	←	←	←	←	←	
評価											
抵抗上昇	○	○	○	○	○	○	○	○	△	△	× (*1)
接着強度 (エージング前) (mN/cm)	5390	4700	4410	5390	5590	4410	5880	5590	4610	3920	5590
(エージング後) (mN/cm)	4120	4020	4120	4700	4410	4210	5000	4510	3330	2940	3920
反応率 (%)	82	85	82	80	84	87	75	67	88	62	60
外観	○	○	○	○	○	○	○	○	△	△	×

(*1) 比較例のエージング後のエージング前に対する抵抗上昇は3倍

【 0 0 5 1 】

表 1 から、本発明の各実施例によれば、比較例に比して抵抗上昇やウキの発生が抑制されていることがわかる。また、本発明の実施例の中でもオキセタン化合物の配合量の合計が 6 0 重量部（接着剤組成物の 5 3 重量％）の実施例 9 では接着剤組成物の反応率が高くなり、硬化物が硬くなってウキの発生が認められ、一方、オキセタン化合物の配合量が 3 重量部（接着剤組成物の 2 . 6 重量％）の実施例 1 0 では、反応率が低くオキセタン化合物の添加効果が少ないことがわかる。

【 0 0 5 2 】

【発明の効果】

本発明の接着剤組成物は反応性が高いので、1 0 0 ℃以下の接続温度で紫外線照射等により信頼性高く接続できる。したがって、この接着剤組成物を用いた異方導電性接着フィルム等の接続材料によると、プラスチック液晶ディスプレイに用いられるプラスチック基板も接続信頼性高く接続することができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 反応性が高く、プラスチック基板も接続信頼性高く接続できる接着剤組成物を得る。

【解決手段】 接着剤組成物を、絶縁性樹脂、光重合開始剤及びオキセタン化合物から構成する。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2000-021870
受付番号	50005008507
書類名	特許願
担当官	市川 勉 7644
作成日	平成12年 2月 2日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】	000108410
【住所又は居所】	東京都中央区日本橋室町1丁目6番3号
【氏名又は名称】	ソニーケミカル株式会社

【代理人】

申請人

【識別番号】	100095588
【住所又は居所】	神奈川県川崎市多摩区三田1-26-28 ニューウェル生田ビル502号室 田治米国際特許事務所

【氏名又は名称】	田治米 登
----------	-------

【代理人】

【識別番号】	100094422
【住所又は居所】	神奈川県川崎市多摩区三田1-26-28 ニューウェル生田ビル502号室 田治米国際特許事務所

【氏名又は名称】	田治米 恵子
----------	--------

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000108410]

1. 変更年月日 1990年 8月 7日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都中央区日本橋室町1丁目6番3号

氏 名 ソニーケミカル株式会社